

高強度近赤外パルスを用いた分子振動波束操作

(分子科学研究所¹、総合研究大学院大学²、JST CRSET³、岩手大学⁴、東北大学⁵)

○後藤悠^{1,2,3}、香月浩之^{1,2,3}、千葉寿^{1,3,4}、大槻幸義^{3,5}、大森賢治^{1,2,3}

分子に超短光パルスを照射すると、複数の固有状態の重ね合わせ状態として波束が生成し、光パルスの振幅・位相情報が分子に転写される。このことを用い、光によって物質の波動関数を制御しようとする試みをコヒーレント制御と呼ぶ。応用例としては、結合選択的な化学反応制御や量子コンピューティング等が挙げられる。我々のグループでは、ヨウ素分子や HgAr 分子に超短レーザーパルスを照射することによって、電子励起状態に振動固有状態のコヒーレントな重ねあわせである振動波束を生成し、その観測・制御を行ってきた [1-7]。本研究では、ヨウ素分子の電子励起状態に生成した振動波束に対し、さらに高強度近赤外パルスを照射したときの波束の変化を詳細に調べることを目的とする。

実験のスキームを図 1 に示す。アルゴンをバッファーガスに用いた分子ジェット中のヨウ素分子に対して 535 nm 付近のフェムト秒レーザーパルス（ポンプパルス）を照射し、*B* 電子励起状態に振動波束を生成した。この振動波束に、高強度のフェムト秒近赤外パルスを照射した。近赤外パルス照射後の波束にプローブパルスを照射し、*E* 電子励起状態からのレーザー誘起蛍光（LIF）信号を観測した。プローブパルスとして（i）バンド幅の広いフェムト秒パルスと（ii）バンド幅の狭いナノ秒パルスを用いた。（i）フェムト秒プローブパルスを用いた測定では、ポンプ - プローブ遅延時間を変化させることにより、波束全体の時間発展を観測した。（ii）ナノ秒プローブパルスを用いた測定では、波束を構成する各振動固有状態の振幅・位相を観測した。位相の測定には、我々のグループで開発された高安定化マイケルソン干渉計（アト秒位相変調器：APM）を用いた。APM で用意したポンプパルスの複製（コントロールパルス）によって生成した波束を、近赤外パルス照射後の波束と干渉させることにより、位相情報の読み出しを行った。

実験の結果、近赤外パルスを照射することにより、（i）フェムト秒プローブパルスを用いた測定では、全体のポピュレーションの減少および波束の時間発展の変化が見られた。また、（ii）ナノ秒プローブパルスを用いた測定では、各振動状態の位相のシフトが見られた。これらの変化は、ポンプパルスに対する近赤外パルスの照射の遅延時間 τ_{NIR} に依存し、この τ_{NIR} 依存性には波束の古典的な分子振動周期に対応する周期性が見られた。位相シフトを引き起こす要因としては、Dynamic Stark 効果によるポテンシャル面の歪みが考えられ、その結果、波束全体の時間発展の変化として現れ

ると考えられる。

参考文献

1. H. Katsuki, H. Chiba, B. Girard, C. Meier, and K. Ohmori, Phys. Rev. Lett. **102**, 163602 (2009).
2. K. Ohmori, Annu. Rev. Phys. Chem. **60**, 487-511 (2009).
3. K. Ohmori, Proceedings of the Japan Academy, Ser. B **84**, 167-175 (2008)
4. H. Katsuki, K. Hosaka, H. Chiba, and K. Ohmori, Phys. Rev. A **76**, 013403 (2007).
5. H. Katsuki, H. Chiba, B. Girard, C. Meier, and K. Ohmori, Science **311**, 1589-1592 (2006).
6. K. Ohmori, H. Katsuki, H. Chiba. *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 093002 (2006).
7. K. Ohmori, Y. Sato, E.E. Nikitin, and S.A. Rice, Phys. Rev. Lett. **91**, 243003 (2003).

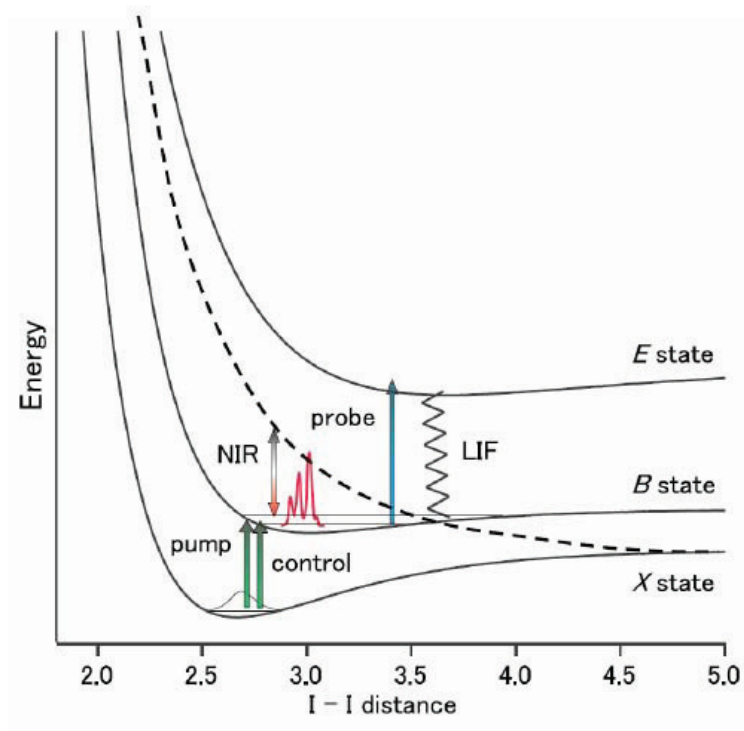


図 1 : 実験スキーム.